

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2004 年 3 月 25 日 (25.03.2004)

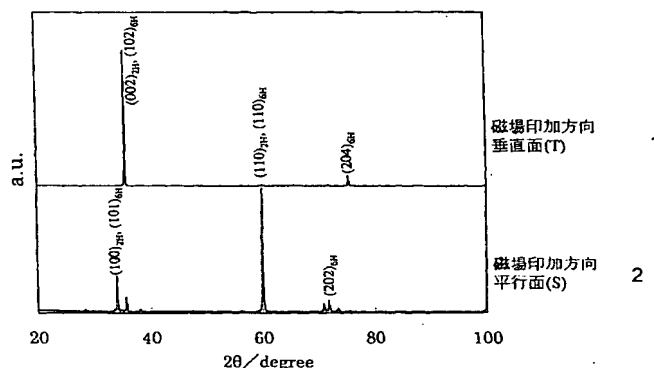
PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/024650 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C04B 35/565
 (21) 国際出願番号: PCT/JP2003/011712
 (22) 国際出願日: 2003 年 9 月 12 日 (12.09.2003)
 (25) 国際出願の言語: 日本語
 (26) 国際公開の言語: 日本語
 (30) 優先権データ:
 特願2002-267824 2002 年 9 月 13 日 (13.09.2002) JP
 (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 独立行政法人物質・材料研究機構 (NATIONAL INSTITUTE FOR MATERIALS SCIENCE) [JP/JP]; 〒305-0047 茨城県つくば市千現 1 丁目 2 番 1 号 Ibaraki (JP).
 (72) 発明者; および
 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 鈴木 達 (SUZUKI, Tohru) [JP/JP]; 〒305-0047 茨城県つくば市千現 1 丁目 2 番 1 号 独立行政法人物質・材料研究機構内 Ibaraki (JP).
 (74) 代理人: 西澤 利夫 (NISHIZAWA, Toshio); 〒150-0042 東京都渋谷区宇田川町 37-10 麻仁ビル 6 階 Tokyo (JP).
 (81) 指定国 (国内): US.
 (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).
 添付公開書類:
 — 国際調査報告書
 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: ORIENTED SILICON CARBIDE SINTERED COMPACT AND METHOD FOR PREPARATION THEREOF

(54) 発明の名称: 配向性炭化ケイ素焼結体とその製造方法



1...PLANE PERPENDICULAR TO DIRECTION OF
MAGNETIC FIELD APPLICATION (T)
2...PLANE PARALLEL WITH DIRECTION OF MAGNETIC
FIELD APPLICATION (S)

(57) Abstract: A novel oriented silicon carbide sintered compact, wherein α silicon carbide is orientated in an arbitrary direction and crystal orientation is controlled to an arbitrary direction; and a method for preparing the oriented silicon carbide sintered compact which comprises mixing α silicon carbide particles with a solvent to form an α silicon carbide slurry, solidifying the slurry, molding the resultant solid, followed by sintering, wherein the solidification, molding and sintering are carried out in a magnetic field of 1 T or higher.

(57) 要約: α 型炭化ケイ素粒子と溶媒を混合して α 型炭化ケイ素スラリーを調整し、このスラリーを 1T 以上の磁場中で固化成形し、焼結することで、 α 型炭化ケイ素が任意の方向に配向されている配向性炭化ケイ素焼結体で、任意の方向に結晶配向が制御された新しい配向性炭化ケイ素焼結体とその製造方法とする。

明 細 書

配向性炭化ケイ素焼結体とその製造方法

技術分野

この出願の発明は、配向性炭化ケイ素焼結体とその製造方法に関するものである。さらに詳しくは、この出願の発明は、結晶配向が制御された組織を有する新しい配向性炭化ケイ素焼結体とその製造方法に関するものである。

背景技術

炭化ケイ素は、高熱伝導性および耐熱性を有し、また強度、硬度および耐磨耗性を兼ね揃えた材料であり、耐火物、研磨材、冶金用材料等として広く使用されている。たとえば、原子炉粒子燃料用被覆材や、ごみ焼却炉の内張り材等の特殊な用途にも使用されている。

そして、金属や他の非酸化物系セラミックスに比べて酸化等の化学的侵食に耐え得るため、高温構造用材料として、各種ろつば、窯炉焼成用部品、メカニカルシール、熱交換器伝熱管等にも使用されている。

また、電磁気的特性からは、発熱体などとして使用され、さらにはバンドギャップが大きいことから高温での半導体としてその利用が注目され、研究開発が進められている。

このように多岐にわたる分野で利用されている炭化ケイ素に関し、近年になって、ベリリアを添加した炭化ケイ素焼結体が電気絶縁性を示すことが見出され、従来知られていた高熱伝導性とこの電気絶縁性を併せ持つ炭化ケイ素が得られるようになった。この高熱伝導絶縁性ベリリア添加炭化ケイ素は、炭化ケイ素の熱膨張係数がシリコンに近く、シリコン半導体チップを直接マウントすることが可能となるため、放電性と電気絶縁性が同時に要求されるLSIやレーザーダイオードの放熱基板

等として既に使用されている。

一方で、炭化ケイ素を含むセラミックスは、一般に、その微構造を制御することで、靱性、強度等の特性を向上させることが可能であり、セラミックスの結晶方向をある一定方向に配向させることで、特性に異方性を持たせたり、あるいは特性を改善する研究開発が盛んに行われてきている。

たとえば、炭化ケイ素に関しては、特開平 9-175870 号公報に、反応焼結により炭化ケイ素の合成を行なう際に、ゾーン焼結を導入することにより、配向性があり強度と靱性に優れた炭化ケイ素が得られることが開示されている。しかしながら、この方法では、遊離 Si が含まれてしまうため、得られる炭化ケイ素の高温強度が低下するという問題があった。また、特開平 11-79845 号公報には、炭化ケイ素粉末、焼結助剤、炭化ケイ素柱状粒子からなる混練物を、押出成形、テープ成形等のせん断力を加える成形法により成形して成形体中の柱状粒子を一方向に配向させ、さらに焼成時に柱状粒子を種結晶として粒成長させて配向させることにより、配向した柱状組織を有する炭化ケイ素材料を製造する方法が開示されている。しかしながら、この方法では、混練物にせん断力を加える成形法のために得られる炭化ケイ素の形状が限定され、配向方向も任意に設定することができないという欠点があった。さらに、Michael D. Sacks らは、J. Am. Ceram. Soc., 79 [6] 1611 (1996) において、平板状炭化ケイ素を含む炭化ケイ素スラリーを鋳込み成形して得た成形体を焼結することにより、配向性のある炭化ケイ素が得られることを報告している。しかしながら、この方法においても、炭化ケイ素は鋳込み成形方向という特定方向のみに配向するので、配向方向が限定されてしまうという問題は残されたままであった。また、球状の粒子のみを用いた配向制御は従来の方では行うことができなかった。

そこで、この出願の発明は、以上の通りの事情に鑑みてなされたものであり、従来技術の問題点を解消し、結晶配向が制御された組織を有す

る新しい配向性炭化ケイ素焼結体とその製造方法を提供することを課題としている。

発明の開示

そこで、この出願の発明は、以上の通りの事情に鑑みてなされたものであり、従来技術の問題点を解消し、以下の通りの発明を提供する。

すなわち、まず第1には、この出願の発明は、配向制御された α 型炭化ケイ素の焼結体であることを特徴とする配向性炭化ケイ素を提供する。

そして、第2には、この出願の発明は、磁場の印加により配向制御された α 型炭化ケイ素の焼結体であることを特徴とする上記の配向性炭化ケイ素焼結体を提供する。

また、この出願の発明は、第3には、 α 型炭化ケイ素粒子と溶媒を混合して α 型炭化ケイ素スラリーを調整し、このスラリーを1 T以上の磁場中で固化成形し、焼結することを特徴とする配向性炭化ケイ素焼結体の製造方法を提供し、第4には、その α 型炭化ケイ素粒子の形状が、球状であることを特徴とする配向性炭化ケイ素焼結体の製造方法を提供する。

この出願の発明者らは、アルミナ、チタニア、酸化亜鉛等の酸化物系の非強磁性体セラミックスの製造に際し、強磁場を印加することにより、結晶配向させることができること（特願2001-144049）を既に見出している。そしてこの出願の発明においては、磁化率が非常に小さいために従来はその磁気異方性は無視できるものとして扱われてきた α -炭化ケイ素に着目し、酸化物系の非強磁性体のみに限定されず、強磁場による炭化ケイ素の配向制御が可能であることを見出し、この出願の発明に至ったものである。

同じ α 型炭化ケイ素でも非常に多くの多形（2H、4H、6H、15Rなど）が存在し、その様子も単純でなく複数の多形が混在することが

多く、焼結中に変態もするので配向制御が難しいとの従来の知見からすれば、この出願の発明は全く想定できないものであり、予期できなかったものである。

図面の簡単な説明

図 1 は、実施例における磁場印加方向とスリップキャスト方向を示した図である。

図 2 は、実施例で得られた配向性炭化ケイ素焼結体の X 線回折測定結果を例示した図である。

図 3 は、比較例における磁場印加方向とスリップキャスト方向、および得られた配向性炭化ケイ素焼結体の X 線回折測定結果を例示した図である。

発明を実施するための最良の形態

この出願の発明は、上記の通りの特徴を持つものであるが、以下にその実施の形態について詳しく説明する。

まず、この出願の発明が提供する配向性炭化ケイ素の製造方法は、 α 型炭化ケイ素粒子と溶媒を混合して α 型炭化ケイ素スラリーを調整し、このスラリーを 1 T 以上の磁場中で固化成形し、焼結することを特徴としている。

原料としての α 型炭化ケイ素は、結晶構造が六方晶系であって、非常に小さいが磁気異方性を有する材料である。この α 型炭化ケイ素粒子としては、大きさが 1 μm 以下程度のものを用いることが好ましい。 α 型炭化ケイ素粒子として平板状のものを用いることも可能ではあるが、この出願の発明においては板状結晶を粒成長の種として用いる必要がなく、また、等軸粒からなる微細組織の炭化ケイ素を得る場合には、球状のものを用いることが好ましい。もちろん、ここでいう球状とは厳密な意味での球ではなく、板状のものに比べて全体として球とみることがで

きる形状を意味し、微視的にはやや角張っているものであってもよい。

溶媒としては、水あるいは非水系のエタノール等のアルコール、エーテル等の有機溶媒、あるいはこれらの混合溶媒等を用いることができる。

以上の α 型炭化ケイ素粒子と溶媒を混合してスラリーを調整する。このスラリーの濃度や電解質の濃度については、 α 型炭化ケイ素粒子の粒径や溶媒の種類、次工程の成形の手法等を考慮して定めることができる。また、このスラリーには、各種の焼結助剤等を添加することができる。この場合のスラリーpHについては、pH 9以上を一般的な目安とすることができる。たとえば水性スラリーとしてpH 9～12程度の範囲である。

次いで、このスラリーを、磁場中で固化成形する。磁場は、磁気異方性の小さい α 型炭化ケイ素を配向させるためにある程度の強度を必要とする。強磁場は、近年の超伝導マグネットの発達により、液体ヘリウムを使用せずに比較的簡単に得ることができ、非磁性物質であっても外界から及ぼされる無視できないエネルギーとして磁場が作用することになる。このような磁場の目安としては1 T以上、より好ましくは5 T以上、たとえば10 T程度することが望ましい。また、磁場の印加方向については、任意の方向を選択することができる。成形の方向や形状に限定されることなく、磁場の印加方法に対応した配向方向とすることができる。

また、成形には各種の手法を利用することができる。たとえば、スリップキャスト、ゲルキャスト、プレッシャーフィルトレーション、テープキャスト、電気泳動堆積等のコロイドプロセスが好適な手法として例示される。

そして、得られた成形体を焼結することで、配向性炭化ケイ素を得ることができる。この焼結は、所望の配向性炭化ケイ素の形状や組織等に応じて様々な焼結方法や焼結条件を考慮することができる。焼結助剤を使用することもできる。たとえば、焼結の条件としては、焼結助剤によ

り異なるが不活性ガス雰囲気中、1800～2300℃の温度範囲で、1～3時間程度とすることが例示される。この焼結により、組織の緻密化と粒成長過程での配向が促進されることになる。

このようにして得られるこの出願の発明の配向性炭化ケイ素は、 α 型炭化ケイ素が任意の方向に配向制御されており、強度と靱性が同時に高められ、また熱伝導度が大幅に向上されることになる。また、等軸粒からなる微細組織のものとすることもできるので、強度や靱性がより高められ、これらの特性の方向依存性を少なくすることができる。さらには、特定方向への粒成長が抑制されているので、高温でも安定した特性を得ることができる。

以下、添付した図面に沿って実施例を示し、この発明の実施の形態についてさらに詳しく説明する。

実 施 例

(実施例)

平均粒径0.5 μm の α -炭化ケイ素粉末100重量部に、焼結助剤として平均粒径0.5 μm のアルミナを4.3重量部の割合で混合し、固相濃度30 vol %となるように秤量してpH10に調整した水溶液中に分散させてスラリーを作製した。このとき、弱く凝集した粒子を再分散させるために、スターラーで分散させながら超音波攪拌した。このスラリーを多孔質の型内に流し込み、溶液を吸収させて高密度に成形する操作（スリップキャスト）を、10 Tの磁場中で行った。図1に示したように、磁場印加方向とスリップキャスト方向とを平衡にした。この成形体をアルゴン雰囲気中で、1950℃で2時間加熱して、配向性炭化ケイ素焼結体を得た。図2は、得られた配向性炭化ケイ素焼結体のX線回折測定結果を示したものである。

図2から、磁場印加方向に垂直な面（T）に2Hの（200）面、6Hの（102）面が、平行な面（S）に（100）面がきれいに配向し

た配向性炭化ケイ素焼結体を得られたことが確認された。

（比較例）

実施例と同様に調整したスラリーを、磁場を印加せずにスリップキャストを行ない、成形体を作製した。この成形体をアルゴン雰囲気中で、1950℃で2時間加熱して、炭化ケイ素焼結体を得た。得られた炭化ケイ素焼結体のX線回折測定結果を図3に示した。

図3から、磁場印加方向に垂直な面（T）、平行な面（S）ともに同様の回折線が見られ、得られた焼結体において炭化ケイ素は配向していないことが確認された。

もちろん、この発明は以上の例に限定されるものではなく、細部については様々な態様が可能であることは言うまでもない。

産業上の利用可能性

以上詳しく説明した通り、この発明によって、任意の方向に結晶配向し、かつ等軸粒からなる微細組織を有する新しい配向性炭化ケイ素焼結体とその製造方法が提供される。

請求の範囲

1. 配向制御された α 型炭化ケイ素の焼結体であることを特徴とする配向性炭化ケイ素焼結体。
2. 磁場の印加により配向制御された α 型炭化ケイ素の焼結体であることを特徴とする請求項1の配向性炭化ケイ素。
3. α 型炭化ケイ素粒子と溶媒を混合して α 型炭化ケイ素スラリーを調整し、このスラリーを1 T以上の磁場中で固化成形し、焼結することを特徴とする配向性炭化ケイ素焼結体の製造方法。
4. α 型炭化ケイ素粒子の形状が、球状であることを特徴とする請求項3記載の配向性炭化ケイ素焼結体の製造方法。

図 1

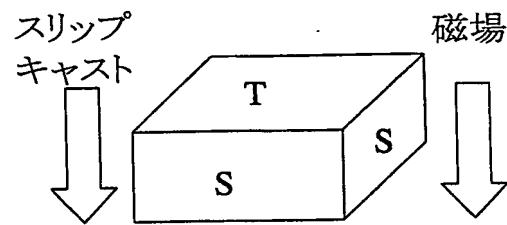


図 2

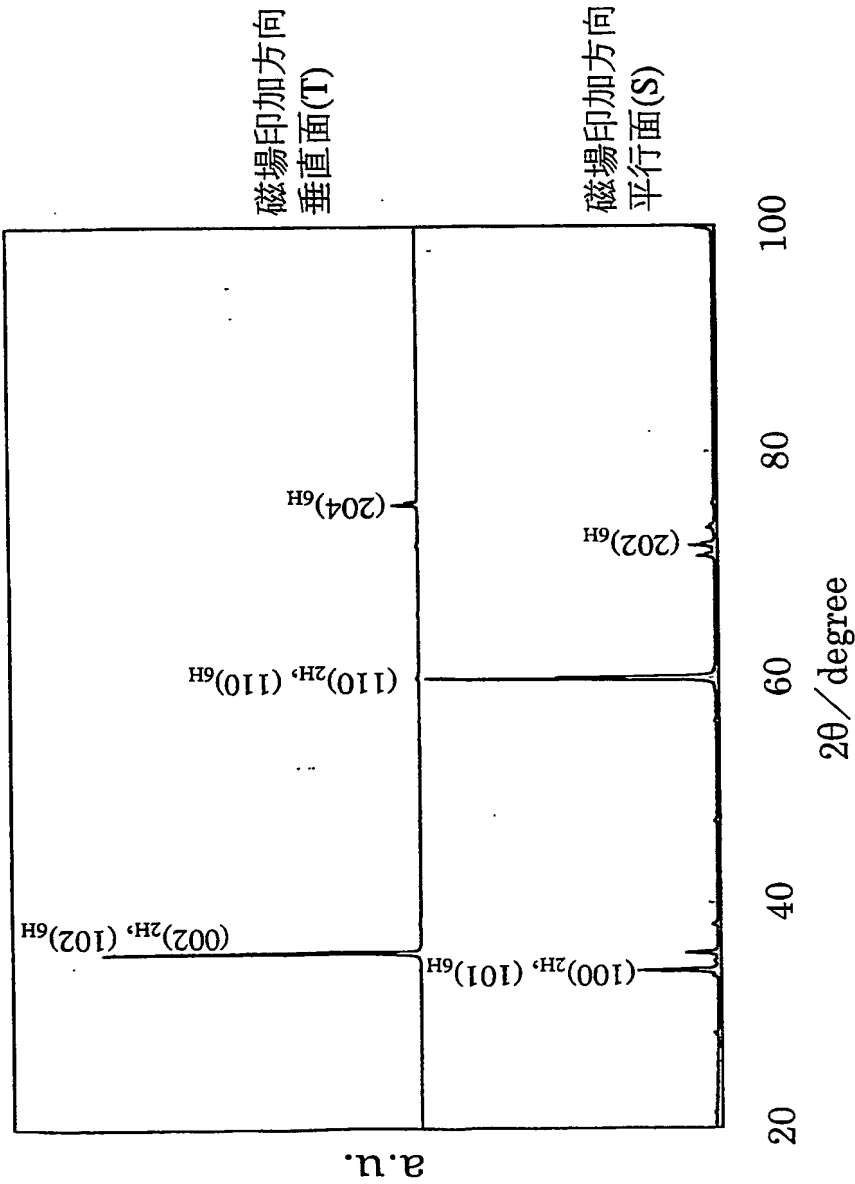
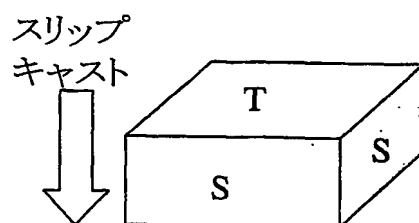
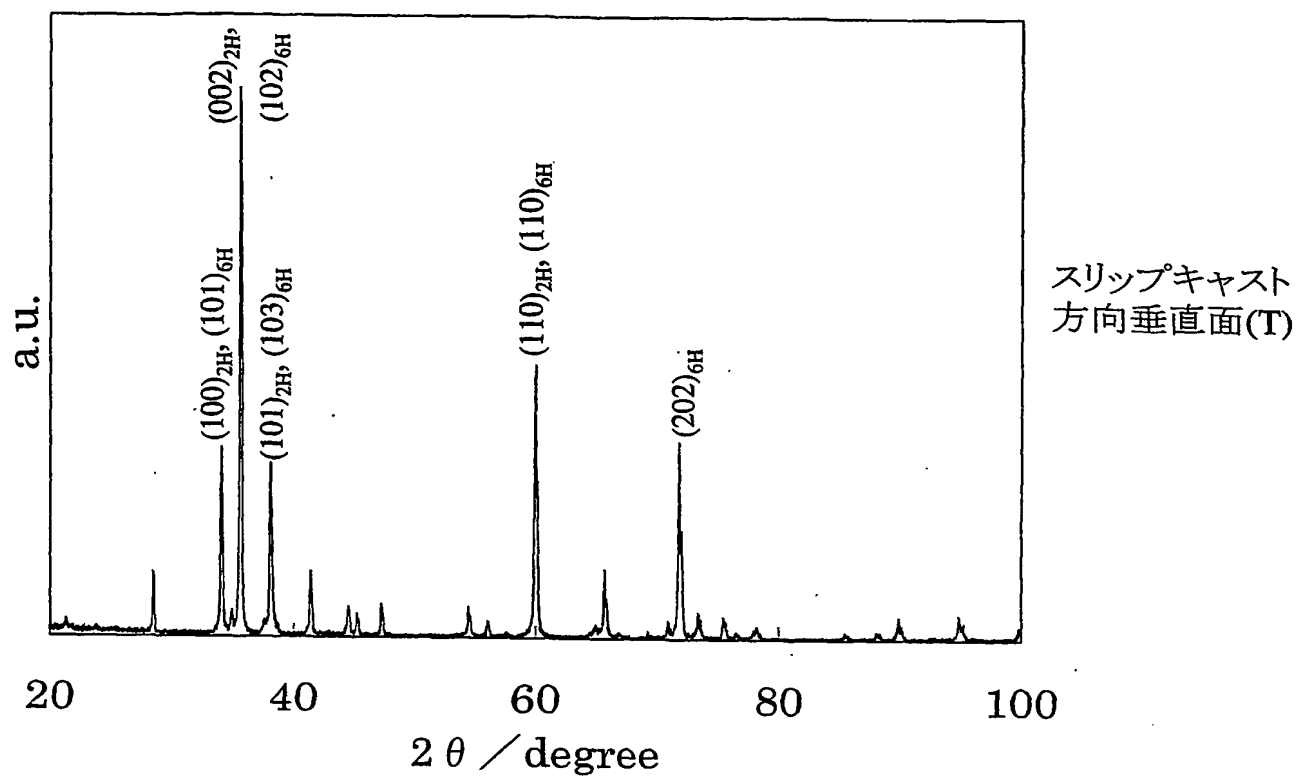


図 3



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/11712

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C04B35/565

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C04B35/565

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI, JICST FILE (JOIS), [HAIGO and JIBA and SIC]
(in Japanese)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 9-175870 A (Hitachi, Ltd.), 08 July, 1997 (08.07.97), Full text & DE 19654182 A1	1
X	JP 63-95159 A (Hitachi, Ltd.), 26 April, 1988 (26.04.88), Claims; page 4, lower left column, lines 8 to 17 (Family: none)	1
X	JP 11-79845 A (Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd.), 23 March, 1999 (23.03.99), Full text (Family: none)	1

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
23 October, 2003 (23.10.03)

Date of mailing of the international search report
04 November, 2003 (04.11.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/11712

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 2002-45531 A1 (SUZUKI, Toru et al.), 18 April, 2002 (18.04.02), Claims & JP 2003-112974 A Claims & JP 2002-193572 A Claims	1-4
Y	MICHAUD Bernard et al., Experimental Study of the Magnetic Orientation of Ceramic Fibers Material Transactions, JIM, 2000, Vol.41, No.8, pages 962 to 965	1-4
P,A	JP 2003-95748 A (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology), 03 April, 2003 (03.04.03), Full text (Family: none)	1-4

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C04B35/565

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C04B35/565

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2003年
 日本国実用新案登録公報 1996-2003年
 日本国登録実用新案公報 1994-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI

JICST科学技術文献ファイル (JOIS), [配合 and 磁場 and SiC]

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 9-175870 A (株式会社日立製作所) 1997. 07. 08, 全文 & DE 19654182 A1	1
X	JP 63-95159 A (株式会社日立製作所) 1988. 04. 26, 特許請求の範囲, 第4頁左下欄第8~17行 (ファミリーなし)	1
X	JP 11-79845 A (石川島播磨重工業株式会社) 1999. 03. 23, 全文 (ファミリーなし)	1

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「(I)」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

23. 10. 03

国際調査報告の発送日

04.11.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

村守 宏文



4T

9729

電話番号 03-3581-1101 内線 6791

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	US 2002-45531 A1 (SUZUKI Toru et al.) 2002.04.18, 特許請求の範囲 & JP 2003-1 12974 A 特許請求の範囲 & JP 2002-1935 72 A 特許請求の範囲	1-4
Y	MICHAUD Bernard et al. Experimental Study of the Magnetic Or ientation of Ceramic Fibers Material Transactions, JIM, 200 0, Vol.41, No.8 pages 962 to 965	1-4
PA	JP 2003-95748 A (独立行政法人産業技術総合研究 所) 2003.04.03, 全文 (ファミリーなし)	1-4

特 許 協 力 条 約

PCT

REC'D 02 DEC 2004

WIPO

PCT

特許性に関する国際予備報告 (特許協力条約第二章)

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 03-F-068PCT	今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO3/11712	国際出願日 (日.月.年) 12.09.2003	優先日 (日.月.年) 13.09.2002
国際特許分類 (IPC) Int. Cl ⁷ C04B35/565		
出願人 (氏名又は名称) 独立行政法人物質・材料研究機構		

1. この報告書は、PCT35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。
法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。

3. この報告には次の附属物件も添付されている。

a ☒ 附属書類は全部で 4 ページである。

☒ 補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面の用紙 (PCT規則70.16及び実施細則第607号参照)

☐ 第I欄4. 及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙

b ☐ 電子媒体は全部で (電子媒体の種類、数を示す)。
配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。 (実施細則第802号参照)

4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

☒ 第I欄 国際予備審査報告の基礎

☐ 第II欄 優先権

☐ 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成

☐ 第IV欄 発明の単一性の欠如

☒ 第V欄 PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明

☐ 第VI欄 ある種の引用文献

☐ 第VII欄 国際出願の不備

☐ 第VIII欄 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 15.03.2004	国際予備審査報告を作成した日 12.11.2004	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 村守 宏文	4T 9729
電話番号 03-3581-1101 内線 6791		

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (2004年1月)

第I欄 報告の基礎

1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎とした。

☐ この報告は、_____語による翻訳文を基礎とした。

それは、次の目的で提出された翻訳文の言語である。

- ☐ PCT規則12.3及び23.1(b)にいう国際調査
☐ PCT規則12.4にいう国際公開
☐ PCT規則55.2又は55.3にいう国際予備審査

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1-2, 4-5 _____ ページ、出願時に提出されたもの

第 3, 6-7 _____ ページ*、20.07.2004 付で国際予備審査機関が受理したもの

第 _____ ページ*、_____ 付で国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 3 _____ 項、出願時に提出されたもの

第 _____ 項*、PCT19条の規定に基づき補正されたもの

第 2, 4 _____ 項*、01.11.2004 付で国際予備審査機関が受理したもの

第 _____ 項*、_____ 付で国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1-3 _____ ~~ページ~~図、出願時に提出されたもの

第 _____ ページ/図*、_____ 付で国際予備審査機関が受理したもの

第 _____ ページ/図*、_____ 付で国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☒ 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 _____ ページ

☒ 請求の範囲 第 1 _____ 項

☐ 図面 第 _____ ページ/図

☐ 配列表(具体的に記載すること)

☐ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること)

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

☐ 明細書 第 _____ ページ

☐ 請求の範囲 第 _____ 項

☐ 図面 第 _____ ページ/図

☐ 配列表(具体的に記載すること)

☐ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること)

* 4. に該当する場合、その用紙に“superseded”と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲 2-4	有 無
	請求の範囲	
進歩性 (IS)	請求の範囲 2-4	有 無
	請求の範囲	
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲 2-4	有 無
	請求の範囲	

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

- 文献1: JP 9-175870 A (株式会社日立製作所) 1997. 07. 08,
特許請求の範囲 & DE 19654182 A1
- 文献2: JP 63-95159 A (株式会社日立製作所) 1988. 04. 26,
特許請求の範囲, 第4頁左下欄第8~17行 (ファミリーなし)
- 文献3: JP 11-79845 A (石川島播磨重工業株式会社) 1999. 03. 23
[0009] (ファミリーなし)
- 文献4: JP 2002-193672 A (独立行政法人物質・材料研究機構)
2002. 07. 10, 特許請求の範囲 & US 2002-45531 A1
& JP 2003-112974 A
- 文献5: MICHAUD Bernard et al. EXPERIMENTAL STUDY OF THE MAGNETIC ORIENTATION OF
CERAMIC FIBERS MATERIAL TRANSACTIONS, JIM, 2000, VOL. 41, NO. 8
PAGES 962-965

請求の範囲2-4に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献1-5に対して進歩性を有する。文献1-3には、磁性を利用してセラミックの配向性を制御することが記載されていない。文献4には磁性を利用してセラミックの配向性を制御することが記載されているものの、焼結体の原材料として α 型炭化ケイ素粒子を用いることは記載されていない。また、文献5には、磁化率が低い炭化ケイ素等からなるセラミックを強磁場で配向させることが記載されているものの、これは繊維体の形状に由来する磁気異方性を利用して、炭化ケイ素の繊維体を配向させるものであるから、本願及び文献4に記載されたセラミックの配向性制御とは技術思想を異にするものである。

る新しい配向性炭化ケイ素焼結体とその製造方法を提供することを課題としている。

発明の開示

そこで、この出願の発明は、以上の通りの事情に鑑みてなされたものであり、従来技術の問題点を解消し、以下の通りの発明を提供する。

すなわち、まず第1には、この出願の発明は、配向制御された α 型炭化ケイ素を主成分とする焼結体であることを特徴とする配向性炭化ケイ素を提供する。

そして、第2には、この出願の発明は、磁場の印加により配向制御された α 型炭化ケイ素を主成分とする焼結体であることを特徴とする上記の配向性炭化ケイ素焼結体を提供する。

また、この出願の発明は、第3には、 α 型炭化ケイ素粒子と溶媒を混合して α 型炭化ケイ素スラリーを調整し、このスラリーを1 T以上の磁場中で固化成形し、焼結することを特徴とする配向性炭化ケイ素焼結体の製造方法を提供し、第4には、その α 型炭化ケイ素粒子の形状が、球状であることを特徴とする配向性炭化ケイ素焼結体の製造方法を提供する。

この出願の発明者らは、アルミナ、チタニア、酸化亜鉛等の酸化物系の非強磁性体セラミックスの製造に際し、強磁場を印加することにより、結晶配向させることができること（特願2001-144049）を既に見出している。そしてこの出願の発明においては、磁化率が非常に小さいために従来はその磁気異方性は無視できるものとして扱われてきた α -炭化ケイ素に着目し、酸化物系の非強磁性体のみに限定されず、強磁場による炭化ケイ素の配向制御が可能であることを見出し、この出願の発明に至ったものである。

同じ α 型炭化ケイ素でも非常に多くの多形（2H、4H、6H、15Rなど）が存在し、その様子も単純でなく複数の多形が混在することが

り異なるが不活性ガス雰囲気中、1800～2300℃の温度範囲で、1～3時間程度とすることが例示される。この焼結により、組織の緻密化と粒成長過程での配向が促進されることになる。

このようにして得られるこの出願の発明の配向性炭化ケイ素は、 α 型炭化ケイ素が任意の方向に配向制御されており、強度と靱性が同時に高められ、また熱伝導度が大幅に向上されることになる。また、等軸粒からなる微細組織のものとすることもできるので、強度や靱性がより高められ、これらの特性の方向依存性を少なくすることができる。さらには、特定方向への粒成長が抑制されているので、高温でも安定した特性を得ることができる。

以下、添付した図面に沿って実施例を示し、この発明の実施の形態についてさらに詳しく説明する。

実 施 例

(実施例)

平均粒径0.5 μm の α -炭化ケイ素粉末100重量部に、焼結助剤として平均粒径0.5 μm のアルミナを4.3重量部の割合で混合し、固相濃度30 vol %となるように秤量してpH10に調整した水溶液中に分散させてスラリーを作製した。このとき、弱く凝集した粒子を再分散させるために、スターラーで分散させながら超音波攪拌した。このスラリーを多孔質の型内に流し込み、溶液を吸収させて高密度に成形する操作（スリップキャスト）を、10 Tの磁場中で行った。図1に示したように、磁場印加方向とスリップキャスト方向とを平行にした。この成形体をアルゴン雰囲気中で、1950℃で2時間加熱して、配向性炭化ケイ素焼結体を得た。図2は、得られた配向性炭化ケイ素を主成分とする焼結体のX線回折測定結果を示したものである。

図2から、磁場印加方向に垂直な面（T）に2 Hの（002）面、6 Hの（102）面が、平行な面（S）に（100）面がきれいに配向し

た配向性炭化ケイ素を主成分とする焼結体を得られたことが確認された。

(比較例)

実施例と同様に調整したスラリーを、磁場を印加せずにスリップキャストを行ない、成形体を作製した。この成形体をアルゴン雰囲気中で、1950℃で2時間加熱して、炭化ケイ素焼結体を得た。得られた炭化ケイ素焼結体のX線回折測定結果を図3に示した。

図3から、磁場印加方向に垂直な面(T)、平行な面(S)ともに同様の回折線が見られ、得られた焼結体において炭化ケイ素は配向していないことが確認された。

もちろん、この発明は以上の例に限定されるものではなく、細部については様々な態様が可能であることは言うまでもない。

産業上の利用可能性

以上詳しく説明した通り、この発明によって、任意の方向に結晶配向し、かつ等軸粒からなる微細組織を有する新しい配向性炭化ケイ素焼結体とその製造方法が提供される。

請求の範囲

1. (削除)
2. (補正後) 磁場の印加により配向制御された α 型炭化ケイ素を主成分とする焼結体であることを特徴とする配向性炭化ケイ素。
3. α 型炭化ケイ素粒子と溶媒を混合して α 型炭化ケイ素スラリーを調整し、このスラリーを1 T以上の磁場中で固化成形し、焼結することを特徴とする配向性炭化ケイ素焼結体の製造方法。
4. (補正後) α 型炭化ケイ素粒子の形状が、球状であることを特徴とする請求項2記載の配向性炭化ケイ素焼結体の製造方法。


Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY
(Chapter II of the Patent Cooperation Treaty)

(PCT Article 36 and Rule 70)

10/527689
PCT/JP2003/011712


Applicant's or agent's file reference 03-F-068PCT	FOR FURTHER ACTION See Form PCT/IPEA/416	
International application No. PCT/JP2003/011712	International filing date (day/month/year) 12 September 2003 (12.09.2003)	Priority date (day/month/year) 13 September 2002 (13.09.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C04B 35/565		
Applicant NATIONAL INSTITUTE FOR MATERIALS SCIENCE		

<p>1. This report is the international preliminary examination report, established by this International Preliminary Examining Authority under Article 35 and transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>3</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p>3. This report is also accompanied by ANNEXES, comprising:</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (sent to the applicant and to the International Bureau) a total of <u>4</u> sheets, as follows:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis of this report and/or sheets containing rectifications authorized by this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions).</p> <p><input type="checkbox"/> sheets which supersede earlier sheets, but which this Authority considers contain an amendment that goes beyond the disclosure in the international application as filed, as indicated in item 4 of Box No. I and the Supplemental Box.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (sent to the International Bureau only) a total of (indicate type and number of electronic carrier(s)) _____, containing a sequence listing and/or tables related thereto, in computer readable form only, as indicated in the Supplemental Box Relating to Sequence Listing (see Section 802 of the Administrative Instructions).</p>	
<p>4. This report contains indications relating to the following items:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Box No. I Basis of the report</p> <p><input type="checkbox"/> Box No. II Priority</p> <p><input type="checkbox"/> Box No. III Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p><input type="checkbox"/> Box No. IV Lack of unity of invention</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Box No. V Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p><input type="checkbox"/> Box No. VI Certain documents cited</p> <p><input type="checkbox"/> Box No. VII Certain defects in the international application</p> <p><input type="checkbox"/> Box No. VIII Certain observations on the international application</p>	

Date of submission of the demand 15 March 2004 (15.03.2004)	Date of completion of this report 12 November 2004 (12.11.2004)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY

International application No.

PCT/JP2003/011712

Box No. I Basis of the report

1. With regard to the **language**, this report is based on the international application in the language in which it was filed, unless otherwise indicated under this item.

- ☐ This report is based on translations from the original language into the following language _____, which is language of a translation furnished for the purpose of:
- ☐ international search (under Rules 12.3 and 23.1(b))
 - ☐ publication of the international application (under Rule 12.4)
 - ☐ international preliminary examination (under Rules 55.2 and/or 55.3)

2. With regard to the **elements** of the international application, this report is based on *(replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report)*:

- ☐ The international application as originally filed/furnished
- ☒ the description:
- pages _____ 1-2,4-5 _____, as originally filed/furnished
- pages* _____ 3,6-7 _____ received by this Authority on _____ 20 July 2004 (20.07.2004)
- pages* _____ received by this Authority on _____
- ☒ the claims:
- pages _____ 3 _____, as originally filed/furnished
- pages* _____, as amended (together with any statement) under Article 19
- pages* _____ 2,4 _____ received by this Authority on _____ 01 November 2004 (01.11.2004)
- pages* _____ received by this Authority on _____
- ☒ the drawings:
- pages _____ 1-3 _____, as originally filed/furnished
- pages* _____ received by this Authority on _____
- pages* _____ received by this Authority on _____
- ☐ a sequence listing and/or any related table(s) – see Supplemental Box Relating to Sequence Listing.

3. ☒ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☒ the claims, Nos. _____ 1 _____
- ☐ the drawings, sheets/figs _____
- ☐ the sequence listing (*specify*): _____
- ☐ any table(s) related to sequence listing (*specify*): _____

4. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments annexed to this report and listed below had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/figs _____
- ☐ the sequence listing (*specify*): _____
- ☐ any table(s) related to sequence listing (*specify*): _____

* If item 4 applies, some or all of those sheets may be marked "superseded."

INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY

International application No.

PCT/JP03/11712

Box No. V Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	2-4	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	2-4	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	2-4	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations (Rule 70.7)

- Document 1: JP 9-175870 A (Hitachi, Ltd.), July 8, 1997, claims & DE 19654182 A1
 Document 2: JP 63-95159 A (Hitachi, Ltd.), April 26, 1988, claims; page 4, lower left column, lines 8-17, (Family: none)
 Document 3: JP 11-79845 A (Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd.), March 23, 1999, paragraph [0009], (Family: none)
 Document 4: JP 2002-193672 A (Dokuritsu Gyousei Houjin Busshitsu and Zairyou Kenkyuu Kikou), July 10, 2002, claims & US 2002-45531 A1 & JP 2003-112974 A
 Document 5: MICHAUD Bernard et al. EXPERIMENTAL STUDY OF THE MAGNETIC ORIENTATION OF CERAMIC FIBERS MATERIAL TRANSACTIONS, JIM, 2000, VOL. 41, NO. 8 PAGES 962-965

The inventions described in claims 2-4 appear to involve an inventive step over documents 1-5 cited in the ISR. Documents 1-3 do not describe controlling ceramic orientation by using magnetism. Document 4 does describe controlling ceramic orientation by using magnetism; however, it does not describe using α silicon carbide particles as raw material for a sintered compact. Further, although document 5 describes using a strong magnetic field to orient ceramic comprising a silicon carbide with low magnetic susceptibility, because this amounts to using magnetic anisotropy originating in the shape of a fibrous body to orient a silicon carbide fibrous body, this is a different technological concept from the ceramic orientation control described in this application and document 4.